

**(12)**

**EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

**(21)** Anmeldenummer: 84810337.0

**(22)** Anmeldetag: 09.07.84

**(61)** Int. Cl.<sup>4</sup>: **C 08 L 67/02**  
**C 08 K 3/34, C 08 K 5/09**  
**C 08 K 9/04**

**(20)** Priorität: 13.07.83 CH 3842/83

**(40)** Veröffentlichungstag der Anmeldung:  
23.01.85 Patentblatt 85/4

**(64)** Benannte Vertragsstaaten:  
CH DE FR GB IT LI

**(71)** Anmelder: CIBA-GEIGY AG  
Postfach  
CH-4002 Basel(CH)

**(72)** Erfinder: Breitenfellner, Franz, Dr.  
Konrad-Adenauer-Strasse 56  
D-6140 Bensheim 1(DE)

**(72)** Erfinder: Keim Müller, Thomas, Dr.  
Am Kämmlberg 1  
D-6146 Lindental/Odenwald(DE)

**(64)** Flammwidrige verstärkte Formmasse auf der Basis thermoplastischer Polyester und deren Verwendung.

**(67)** Bei verstärkten, flammwidrig ausgerüsteten Formmassen auf der Basis thermoplastischer Polyester kann man der Tropfneigung der bei der Beflammung mit einer offenen Flamme gebildeten Schmelze durch die Zugabe von Schichtsilikaten vorbeugen, und die dadurch verursachte Reduzierung der Zähigkeitseigenschaften durch den Zusatz von Alkalimetallsalzen von aliphatischen C<sub>2-22</sub> Monocarbonsäuren verhindern.

CIBA-GEIGY AG  
Basel (Schweiz)

3-14502/+

Flammwidrige verstärkte Formmasse auf der Basis thermoplastischer Polyester und deren Verwendung

Die vorliegende Erfindung betrifft verstärkte flammwidrig ausgerüstete thermoplastische Polyesterformmassen sowie deren Verwendung zur Herstellung geformter Gegenstände.

Flammwidrig ausgerüstete thermoplastische Polyester, die zusätzlich verstärkt sind, werden vorwiegend im Bereich der Elektrotechnik und der Elektronik eingesetzt. Solche Polyesterformmassen neigen stark zur Bildung von geschmolzenen und gegebenenfalls brennenden Tropfen beim Brennvorgang, erfüllen damit vielfach nicht die an solche Werkstoffe gestellten Sicherheitsbestimmungen, und können deshalb nur in beschränktem Umfang eingesetzt werden.

Es ist bekannt, dass zur Unterdrückung des Abtropfens der sich unter Einwirkung einer offenen Flamme bildenden Schmelze von verstärkten, flammwidrigen Formmassen z.B. bestimmte Gallermittel, wie feinteilige Silikate (DE-AS 24 08 531, FR-PS 2 322 900), Kieselsäurederivate (DE-OS 22 26 931) oder Füllstoffe mit einem Länge/Durchmesserverhältnis von mehr als 50 (DE-AS 21 58 432) verwendet werden können. Beispiele für solche Zusätze sind Kaolin, Talkum, gegebenenfalls organisch modifizierte Bentonite und Montmorillonite, Glaskugeln, oberflächenaktive Kieselsäure, oligomeres Natriumsilikat, Asbest, Graphit- oder Glasfasern, Siliciumcarbid, Diatomeenerde usw. Diese Antitropfmittel sind insofern nachteilig, als sie eine beträchtliche Reduktion der Zähigkeitseigenschaften der resultierenden flamm-

widrig ausgerüsteten verstärkten Formmassen verursachen, wodurch deren Gebrauchseigenschaften beeinträchtigt werden.

Gegenstand der Erfindung ist eine flammwidrige verstärkte Polyesterformmasse, die

- a) einen thermoplastischen Polyester,
- b) 3 bis 50 Gew.-% eines Verstärkerfüllstoffs,
- c) 5 bis 30 Gew.-% eines flammhemmenden Zusatzes,
- d) 0,2 bis 4,0 Gew.-% eines gegebenenfalls organisch modifizierten Schichtsilikats enthält und die dadurch gekennzeichnet ist, dass sie zusätzlich
- e) 0,05 bis 2,0 Gew.-% eines Alkalimetallsalzes einer aliphatischen Monocarbonsäure mit 6 - 22 C-Atomen enthält, wobei sich die Gewichtsprozentage auf das Gesamtgewicht der Formmasse beziehen.

Die erfindungsgemässen Formmassen zeichnen sich durch gute Zähigkeitseigenschaften aus, ohne dass dabei die antitropf- und flammhemmenden Eigenschaften beeinträchtigt werden. Zudem sind die Komponenten e) schon bei geringen bis sehr geringen Zusatzmengen wirksam.

Als Komponenten b) bis e) können je einheitliche Verbindungen bzw. Stoffe oder Gemische verschiedener Verbindungen oder Stoffe verwendet werden.

Für die erfindungsgemässen Formmassen geeignete lineare thermoplastische Polyester sind bevorzugt kristallin bzw. teilkristallin und weisen in diesem Fall insbesondere Schmelzpunkte von mindestens 150°C auf. Sie können jedoch auch in amorpher Form vorliegen, wobei dann

der Polyester bevorzugt eine Glasumwandlungstemperatur von mindestens 70°C, besonders mindestens 100°C, aufweist. Die Viskositätszahl (nach DIN 53728/3) der Polyester beträgt vorzugsweise mindestens 69 ( $\text{cm}^3/\text{g}$ ), insbesondere mindestens 98 ( $\text{cm}^3/\text{g}$ ).

Bei den Polyestern kann es sich um Homo- oder Mischpolyester handeln. Dafür verwendbare Monomere sind z.B. geradkettige oder verzweigte gesättigte aliphatische, cycloaliphatische, aromatische oder heterocyclische Dicarbonsäuren bzw. deren Ester, entsprechende Diöle oder entsprechende Hydroxycarbonsäuren. Ferner sind auch Mischungen dieser Polyester geeignet. Ihre Zusammensetzung richtet sich im wesentlichen nach den für einen bestimmten Verwendungszweck gewünschten Eigenschaften.

Die aliphatischen Dicarbonsäuren können 2 bis 40 C-Atome, die cycloaliphatischen Dicarbonsäuren 6 bis 10 C-Atome, die aromatischen Dicarbonsäuren 8 bis 14 C-Atome, die heterocyclischen Dicarbonsäuren 5 bis 12 C-Atome, die aliphatischen Hydroxycarbonsäuren 2 bis 12 C-Atome und die aromatischen sowie cycloaliphatischen Hydroxycarbonsäuren 7 bis 13 C-Atome und die heterocyclischen Hydroxycarbonsäuren 5 bis 11 C-Atome enthalten.

Die aliphatischen Diöle können 2 bis 12 C-Atome, die cycloaliphatischen Diöle 5 bis 8 C-Atome, die aromatischen Diöle 6 bis 16 C-Atome und die heterocyclischen Diöle 3 - 16 C-Atome enthalten.

Als aromatische Diöle oder Dicarbonsäuren werden jene bezeichnet, bei denen zwei Hydroxyl- bzw. Carboxylgruppen an einen oder verschiedene aromatische Kohlenwasserstoffreste gebunden sind.

Ferner ist es möglich, dass die Polyester mit geringen Mengen, z.B. 0,1 bis 3 Mol %, bezogen auf die vorhandenen Dicarbonsäuren, eines mehr als zwei Carboxyl- und/oder Hydroxylgruppen aufweisenden Monomeren (z.B. Pentaerythrit oder Trimellitsäure) vernetzt sind.

Bei Polyestern aus mindestens 3 verschiedenen Monomeren können diese statistisch verteilt sein, oder es kann sich um Blockpolymere handeln.

Als aliphatische Dicarbonsäuren mit 2 bis 40 C-Atomen kommen z.B. Oxalsäure, Malonsäure, Dimethylmalonsäure, Bernsteinsäure, Octadecylbernsteinsäure, Pimelinsäure, Adipinsäure, Trimethyladipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure und Dimersäure (Dimerisationsprodukte von ungesättigten aliphatischen Carbonsäuren, wie Oelsäure), in Frage.

Als cycloaliphatische Dicarbonsäuren kommen in Frage: 1,3-Cyclobutandicarbonsäure, 1,3-Cyclopentandicarbonsäure, 1,3- und 1,4-Cyclohexandicarbonsäure, 1,3- und 1,4-Methylcyclohexandicarbonsäure, 4,4'-Dicyclohexyldicarbonsäure.

Als geeignete aromatische Dicarbonsäuren kommen in Frage: Terephthalsäure, Isophthalsäure, Phthalsäure, 1,3-, 1,4-, 2,6- oder 2,7-Naphthalindicarbonsäure, 4,4'-Biphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenylsulfondicarbonsäure, 1,1,3-Trimethyl-5-carboxyl-3-(p-carboxyphenyl)-indan, 4,4'-Diphenyletherdicarbonsäure, 4,4'-Diphenylmethandicarbonsäure. Bevorzugt sind die aromatischen Dicarbonsäuren, unter ihnen besonders Terephthalsäure, Isophthalsäure und Phthalsäure.

Weitere geeignete Dicarbonsäuren sind jene, die -CO-NH-Gruppen enthalten, wie sie z.B. in der DE-OS 2 414 349 beschrieben sind. Auch N-heterocyclische Ringe enthaltende Dicarbonsäuren sind geeignet, z.B. solche, die sich von carboxyalkylierten, carboxyphenylierten oder carboxybenzylierten Monoamino-s-triazindicarbonsäuren (vgl. DE-OS 2 121 184 und 2 533 675), Mono- oder Bishydantoinen, gegebenenfalls halogenierten Benzimidazolonen oder Parabansäure ableiten. Die Carboxyalkylgruppe kann hierbei 3 bis 30 C-Atome enthalten.

Geeignete aliphatische Diöle können linear oder verzweigt sein und weisen bevorzugt 2 bis 12, insbesondere 2 bis 6 Kohlenstoffatome auf, wie z.B.: Ethylenglykol, 1,2- und 1,3-Propylenglykol, 1,2-, 1,3-, 2,3- oder 1,4-Butandiol, Pentylglykol, Neopentylglykol, 1,6-Hexandiol, 1,12-Dodecandiol. Ein geeignetes cycloaliphatisches Diol ist z.B. das 1,4-Dihydroxycyclohexan. Weitere geeignete Diöle sind z.B. 1,4-Bis(hydroxymethyl)cyclohexan, aromatisch-aliphatische Diöle, wie p-Dihydroxymethylbenzol oder 2,5-Dichlor-p-dihydroxymethylbenzol, sowie Polyoxyalkylenglykole, wie Diethylenglykol, Triethylenglykol oder Polyethylenglykole. Die Alkyldiöle sind bevorzugt linear und enthalten insbesondere 2 bis 4 Kohlenstoffatome.

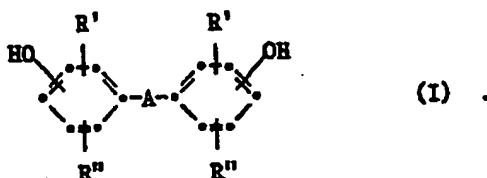
Bevorzugte Diöle sind die Alkyldiöle, 1,4-Dihydroxycyclohexan und 1,4-Bis(hydroxymethyl)cyclohexan. Insbesondere bevorzugt sind Ethylenglykol und 1,4-Butandiol.

Weitere geeignete Diöle sind die  $\beta$ -hydroxyalkylierten, besonders  $\beta$ -hydroxyethylierten Bisphenole, wie 2,2-Bis[4'-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-phenyl]propan. Weitere Bisphenole sind später genannt.

Eine weitere Gruppe von geeigneten Diölen sind die in den deutschen Offenlegungsschriften 1 812 003, 2 342 432, 2 342 372 und 2 453 325 beschriebenen heterocyclischen Diöle. Beispiele sind: N,N'-Bis( $\beta$ -hydroxyethyl)-5,5-dimethylhydantoin, N,N'-Bis( $\beta$ -hydroxypropyl)-5,5-dimethylhydantoin, Methylen-bis[N-( $\beta$ -hydroxyethyl)-5-methyl-5-ethylhydantoin], Methylen-bis[N-( $\beta$ -hydroxyethyl)-5,5-dimethylhydantoin], N,N'-Bis( $\beta$ -hydroxyethyl)benzimidazolon, -(tetrachlor)benzimidazolon oder -(tetrabrom)benzimidazolon.

Als aromatische Diöle kommen einkernige Diphenole in Betracht und besonders zweikernige, die an jedem aromatischen Kern eine Hydroxylgruppe tragen. Unter aromatisch werden bevorzugt kohlenwasserstoffaromatische Reste, wie z.B. Phenylen oder Naphthylen verstanden. Ne-

ben z.B. Hydrochinon und Resorcin sind besonders die Bisphenole zu nennen, die durch die folgende Formel I dargestellt werden können



Die Hydroxylgruppen können sich in m-Stellung, besonders aber in p-Stellung befinden, R' und R'' können in dieser Formel Alkyl mit 1 bis 6 C-Atomen, Halogen, wie Chlor oder Brom, und insbesondere Wasserstoffatome bedeuten. A kann für eine direkte Bindung stehen, oder O, S, SO<sub>2</sub>, unsubstituiertes oder durch Halogen, Phenyl oder Alkylphenyl, bevorzugt mit 1 oder 2 C-Atomen im Alkyl substituiertes Alkyliden, Cycloalkyliden oder Alkylen bedeuten.

Beispiele für gegebenenfalls substituiertes Alkyliden sind:

Ethyliden, 1,1- oder 2,2-Propyliden, 2,2-Butyliden, 1,1-Isobutyliden, Pentyliden, Hexyliden, Heptyliden, Octyliden, Dichlorethyliden, Trichlorethyliden.

Beispiele für gegebenenfalls substituiertes Alkylen sind Methylen, Ethylen, 1,2-Propylen, Phenylmethylen, Diphenylmethylen, Methylphenylmethylen. Beispiele für Cycloalkyliden sind Cyclopentyliden, Cyclohexyliden, Cycloheptyliden und Cyclooctyliden. Bevorzugt sind die Alkyliden-, Cycloalkyliden- oder Alkylengruppen A unsubstituiert.

Beispiele für Bisphenole sind: Bis(p-hydroxyphenyl)ether oder -thioether, Bis(p-hydroxyphenyl)sulfon, Bis(p-hydroxyphenyl)methan, 1,2-Bis(p-hydroxyphenyl)ethan, Phenyl-bis(p-hydroxyphenyl)methan, Diphenyl-bis(p-hydroxyphenyl)methan, 2,2-Bis(4'-hydroxy-3'-methylphenyl)propan, 1,1- oder 2,2-Bis(p-hydroxyphenyl)butan, 1,1-Di-

chlor- oder 1,1,1-Trichlor-2,2-bis(p-hydroxyphenyl)ethan, 1,1-Bis-(p-hydroxyphenyl)cyclopentan und besonders 2,2-Bis(p-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A) und 1,1-Bis(p-hydroxyphenyl)cyclohexan (Bisphenol-C).

Geeignete Polyester aus Hydroxycarbonsäuren sind z.B. Polycaprolacton, Polypivalolacton oder die Polyester aus 4-Hydroxycyclohexancarbonsäure oder 4-Hydroxybenzoesäure.

Lineare Polyester die sich von aromatischen Dicarbonsäuren ableiten, haben die grösste Bedeutung erlangt, insbesondere die Polyalkylenterephthalate. Bevorzugt sind daher erfindungsgemässe Formmassen, in denen der Polyester aus mindestens 30 Mol%, bevorzugt mindestens 40 Mol%, aromatischen Dicarbonsäuren und zu mindestens 30 Mol%, vorzugsweise mindestens 40 Mol%, aus Alkylendiolen mit bevorzugt 2 bis 12 C-Atomen aufgebaut ist, bezogen auf den Polyester.

Insbesondere ist in diesem Fall das Alkylendiol linear und enthält 2 bis 6 C-Atome, wie z.B. Ethylen-, Tri-, Tetra- oder Hexamethylenglykol und die aromatische Dicarbonsäure Terephthal- und/oder Isophthalsäure. Besonders bevorzugt sind als Polyester Polyethylen- und Poly-1,4-butylenterephthalat sowie Copolyester auf der Basis von Polyethylen- und Poly-1,4-butylenterephthalat. Ganz besonders bevorzugt ist Poly-1,4-butylenterephthalat (PBTP).

Die definitionsgemässe Formmasse enthält den verstärkenden Füllstoff vorzugsweise in Form von Fasern, z.B. Asbestfasern, Kohlenstofffasern oder insbesondere Glasfasern. Die Füllstoffe können mit einem Haftvermittler beschichtet sein, um deren Bindung an den Polyester zu verbessern. Die Menge des Verstärkerfüllstoffes beträgt vorzugsweise 10 bis 50 Gew.-% besonders bevorzugt 10 bis 40 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt 25 bis 35 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse.



Die definitionsgemäße Formmasse enthält insbesondere 10 bis 20 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse, eines flammhemmenden Zusatzes.

Geeignete flammhemmende Zusätze sind z.B. organische Halogenverbindungen, besonders Chlor- oder Bromverbindungen, die alleine oder zusammen mit synergistisch wirkenden Verbindungen mit Elementen der fünften Hauptgruppe des Periodensystems, besonders von Phosphor- und Antimonverbindungen, insbesondere Antimontrioxid, verwendet werden.

Flammschutzmittel auf der Basis von organischen chlor- und/oder besonders bromhaltigen Verbindungen sind bekannt. Es kann sich hierbei um solche handeln, die dem Kunststoff als Mischkomponente einverleibt sind, oder um solche, die als reaktive Monomere in die Polymermoleküle eingebaut sind. Beispiele für letztere sind Tetrachlorphthalsäureanhydrid, Dichlorterephthalsäure oder deren Niederalkylester, Tetrabromphthalsäureanhydrid, Tetrabrombisphenol-A, N,N'-Bis( $\beta$ -hydroxyethyl)tetrachlor- oder -tetrabrombenzimidazol.

Weitere Beispiele für chlor- und/oder bromhaltige Verbindungen sind: Bromierte Polystyrole, z.B. Polytribromstyrol, Polypentabromstyrol, Decabrombiphenyl, Tetrabrombiphenyl, Hexabromdiphenylether, Octabromdiphenylether, Decabromdiphenylether, Tetrabromdiphenylsulfid, Hexabromdiphenylsulfon, 3-(2',4',6'-Tribromphenoxy)-1,2-propanediol, Di- oder Tetrabromphthalsäure bzw. deren Anhydride, Dibromterephthalsäure, hydroxyethyliertes Di- oder Tetrabrombisphenol-A, Tetrabrom-1,4-bis(hydroxymethyl)benzol, Tetrabrombenzimidazol, N,N'-Ethylen-bis-tetrabromphthalimid sowie die chloranalogen Verbindungen. Weitere organische Halogenverbindungen sind z.B. in der deutschen Offenlegungsschrift 2 242 450 beschrieben.

Das bevorzugte Flammschutzmittel ist eine Kombination von Antimon-

trioxid mit bromiertem Polystyrol oder mit N,N'-Ethylen-bis-tetrabromphthalimid, und besonders bevorzugt mit Decabromdiphenylether.

Beim erfindungsgemäss verwendeten Schichtsilikat-Antitropfmittel kann es sich um ein Smektit, insbesondere ein Bentonit bzw. Montmorillonit handeln. Es können auch organisch, insbesondere mit organischen Ammoniumsalzen, modifizierte Smektite eingesetzt werden, worin die organischen Reste z.B. Phenyl-, Benzyl- oder Alkylgruppen sein können. Bevorzugt sind Ammoniumsalze die mindestens eine langkettige Alkylgruppe aufweisen, vor allem Tetraalkylammoniumsalze mit einer oder zwei Alkylgruppen mit z.B. 10 bis 25 C-Atomen, insbesondere mit 16 bis 20 C-Atomen. Bevorzugte Produkte dieser Art sind unter den Handelsnamen Claytone<sup>®</sup> (China-Clay Handelsgesellschaft, Düsseldorf, BRD), bzw. Bentone<sup>®</sup> (NL Chemicals, Wilmslow, U.K.) bekannt. Vorzugsweise werden Claytone<sup>®</sup> 34 oder 40 (beide Dimethyl-Dioctadecyl-Ammonium-Bentonit), bzw. Bentone<sup>®</sup> 27, 34 (Dimethyl-Dioctadecyl-Ammonium-Montmorillonit), 38, 500 oder SD-1 eingesetzt, wobei Bentone<sup>®</sup> 500 und Bentone<sup>®</sup> SD-1 besonders bevorzugt werden.

Die Schichtsilikate werden bevorzugt in einer Gesamtmenge von 0,75 bis 2,0 Gew.-% bezogen auf die Gesamtmasse, eingesetzt.

Als Alkalimetallsalze e) enthalten die erfindungsgemässen Formmassen vor allem Natrium- oder Kaliumsalze gesättigter oder ungesättigter aliphatischer Monocarbonsäuren mit 10 bis 20 C-Atomen, vorzugsweise mit 14 bis 18 C-Atomen. Bevorzugte Alkalimetallsalze sind Kalium- und/oder Natriumstearat, Kalium- und/oder Natriumoleat, insbesondere Kaliumoleat. Die Komponente e) liegt vorzugsweise in einer Gesamtmenge von 0,05 bis 1 Gew.-%, insbesondere von 0,1 bis 0,6 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmasse, vor.

Die thermoplastischen Polyester sind bekannt und handelsüblich oder sie können nach bekannten Polykondensationsverfahren der Technik hergestellt werden.

Die Herstellung der erfindungsgemässen Formmassen erfolgt ebenfalls nach in der Technik üblichen Methoden durch Einarbeiten der Zusätze in den thermoplastischen Polyester, z.B. durch Umgranulieren. Das Schichtsilikat sowie das Alkalimetallsalz kann auch auf das Polyestergranulat aufgetrommelt werden.

Es können auch weitere übliche Zusätze zugegeben werden, z.B. weitere Füllstoffe, wie beispielsweise Talk, Glimmer, Metallpulver, Kieselsäureaerosol, Kaolin, Calciumcarbonat, Dolomit, Magnesiumsulfat, Silikate oder Glaskugeln, anorganische oder organische Pigmente, optische Aufheller, Mattierungsmittel, Gleitmittel, Entformungshilfsmittel, kristallisationsfördernde Mittel, Antioxidantien, Lichtschutzmittel und Verarbeitungsstabilisatoren.

Bei den erfindungsgemässen Formmassen wird das Abtropfen der Schmelze beim Beflammen wirksam verhindert. Weiterhin bleiben wegen der Zugabe der Alkalimetallsalze aliphatischer  $C_{6-22}$  Monocarbonsäuren die guten Zähigkeitseigenschaften der Formmassen weitgehend erhalten. Die Einarbeitung der Zusätze ist problemlos, und es wird eine gleichmässige Verteilung in der Formmasse erzielt.

Die Formmassen können nach gebräuchlichen Formgebungsverfahren wie Giessen, Pressen, Spritzgiessen und Extrudieren zu Gebrauchsgegenständen aller Art verarbeitet werden. Beispiele für solche Gegenstände sind technische Apparateile, Apparategehäuse, Haushaltgeräte, Sportgeräte, Elektroisolationen, Automobilteile, Schaltungen, Platten, Filme und Halbzeuge, die spanabhebend verformt werden können. Ein besonderes Anwendungsgebiet ist die Herstellung von Formkörpern bzw. Umhüllungen für die Elektrotechnik und

## Elektronik.

Die folgenden Beispiele erläutern die Erfindung näher. Die in den Beispielen angegebenen Gew.-%-Mengen der Einzelkomponenten sind immer auf die Gesamtmasse bezogen.

Beispiele 1 - 9: Die in Tabelle 1 angeführten Komponenten werden mit Hilfe eines Labor-Kokneters bei 250°C in Polybutylenterephthalat (Viskositätszahl nach DIN 53728/3 102 cm<sup>3</sup>/g) eingearbeitet und die Formmasse wird granuliert. Nach dem Trocknen der Granulate erfolgt ihre Verarbeitung zu Formkörpern durch Spritzgiessen (125 x 12,5 x 1,6 mm für die Brennbarkeitsprüfung und 6 x 4 x 50 mm für die Schlagzähigkeitsprüfung) nach den folgenden Bedingungen:

Zylindertemperatur 250°C

Werkzeugtemperatur 80°C

Zykluszeit 45 sec.

Beispiele 10-12: Die in der Tabelle 1 erstaufgeführten vier Komponenten (PBTP, Glasfasern, Flammenschutzmittel und Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) werden mit Hilfe eines Labor-Kokneters zur Formmasse verarbeitet, und die Formmasse wird granuliert. Nach dem Trocknen der Granulate werden die letzten zwei Komponenten (Schichtsilikat und Alkalimetallsalz) in einem Taumelmischer aufgetrommelt, und anschliessend, wie oben beschrieben, Spritzgiessformkörper hergestellt.

An den Formkörpern wird die Brennbarkeit gemäss UL 94 sowie die Schlagzähigkeit nach DIN 53453 ermittelt. Bei der Brennbarkeitsprüfung erweisen sich die Formteile als selbstverlöschend V-0 und nicht tropfend. Im Schlagversuch erweisen sich die Probekörper als schlagzäh, wobei die Schlagzähigkeit je nach Art und Menge des Schichtsilikats d) und des Alkalimetallsalzes e) variiert.

Tabelle 1

Bei- spiel Nr.	Zusammensetzung	Brennbarkeit UL-94 (1,6 mm Proben- dicke)	Schlagzähigkeit DIN 53453 ( $\frac{kJ}{m^2}$ )
1	55,0 Gew.-% PBT <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% $Sb_2O_3$ <sup>®</sup> 34 1,0 Gew.-% Claytone <sup>®</sup> 40 0,5 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	25,9
2	55,3 Gew.-% PBT <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% $Sb_2O_3$ <sup>®</sup> 34 1,0 Gew.-% Claytone <sup>®</sup> 40 0,2 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	25,4

Tabelle 1 (Fortsetzung)

Bei- spiel Nr.	Zusammensetzung	Brennbarkeit UL-94 (1,6 mm Proben- dicke)	Schlagzähigkeit DIN 53453 (kJ/m <sup>2</sup> )
3	55,1 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Claytone <sup>®</sup> 40 0,4 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	25,8
4	54,7 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Claytone <sup>®</sup> 40 0,8 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	20,3

Tabelle 1 (Fortsetzung)

Bei- spiel Nr.	Zusammensetzung	Brennbarkeit UL-94 (1,6 mm Proben- dicke)	Schlagzähigkeit DIN 53453 <sup>2</sup> (kJ/m)
5	55,0 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Claytone <sup>®</sup> 40 0,5 Gew.-% Natriumoleat	V-0 nicht tropfend	20,9
6	53,5 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 2,0 Gew.-% Claytone <sup>®</sup> 40 1,0 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	16,5

Tabelle 1 (Fortsetzung)

Bei- spiel Nr.	Zusammensetzung	Brennbarkeit UL-94 (1,6 mm Proben- dicke)	Schlagzähigkeit DIN 53453 (kJ/m <sup>2</sup> )
7	55,0 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Bentone ® 27 0,5 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	22,5
8	55,2 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Bentone ® SD-1 0,3 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	32,2



Tabelle 1 (Fortsetzung)

Bei- spiel Nr.	Zusammensetzung	Brennbarkeit UL-94 (1,6 mm Proben- dicke)	Schlagzähigkeit DIN 53453 (kJ/m <sup>2</sup> )
9	55,2 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Bentone ® 500 0,3 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	29,9
10	62,5 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 20,0 Gew.-% Glasfasern 12,5 Gew.-% Polytribromstyrol 5,0 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Claytöne ® 34 0,3 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	25,4

Tabelle 1 (Fortsetzung)

Bei- spiel Nr.	Zusammensetzung	Brennbarkeit UL-94 (1,6 mm Proben- dicke)	Schlagzähigkeit DIN 53453 (kJ/m <sup>2</sup> )
11	56,5 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 1,0 Gew.-% Montmorillonit K 10 (Fluka) 0,3 Gew.-% Kaliumoleat	V-0 nicht tropfend	23,1
12	56,5 Gew.-% PBTP <sup>1</sup> 30,0 Gew.-% Glasfasern 9,0 Gew.-% Decabromdiphenylether 4,5 Gew.-% Sb <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ® <sup>34</sup> 1,0 Gew.-% Bentone ® <sup>34</sup> 0,5 Gew.-% Natriumstearat	V-0 nicht tropfend	21,6

<sup>1</sup> PBTP: Poly-1,4-butylenterephthalat  
<sup>2</sup> Claytone ® und Bentone ® sind geschützte Markennamen der Firmen "China-Clay Handelsgesellschaft"  
 bzw. "NL Chemicals".  
 Claytone ® 40 und Claytone ® 34: Dimethyl-Dioctadecyl-Ammonium-Bentonit  
 Bentone ® 34: Dimethyl-Dioctadecyl-Ammonium-Montmorillonit  
 Bentone ® SD-1: Organisch modifizierter Smektit  
 Bentone ® 27 und Bentone ® 500: Organisch modifizierter Montmorillonit

Patentansprüche

1. Flammwidrige verstärkte Polyesterformmasse, die
  - a) einen thermoplastischen Polyester,
  - b) 3 bis 50 Gew.-% eines Verstärkerfüllstoffs,
  - c) 5 bis 30 Gew.-% eines flammhemmenden Zusatzes,
  - d) 0,2 bis 4,0 Gew.-% eines gegebenenfalls organisch modifizierten Schichtsilikats enthält und die dadurch gekennzeichnet ist, dass sie zusätzlich
  - e) 0,05 bis 2,0 Gew.-% eines Alkalimetallsalzes einer aliphatischen Monocarbonsäure mit 6 bis 22 C-Atomen enthält, wobei sich die Gewichtsprozentage auf das Gesamtgewicht der Formmasse beziehen.
2. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Polyester linear und von aromatischen Dicarbonsäuren abgeleitet ist, und insbesondere ein Polyalkylenterephthalat ist.
3. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Polyester ein Polyethylen- oder Poly-1,4-butylenterephthalat oder ein Copolyester auf der Basis von Polyethylen- und von Poly-1,4-butylenterephthalat ist.
4. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Polyester Poly-1,4-butylenterephthalat ist.
5. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Verstärkerfüllstoff Glasfasern enthält.
6. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als flammhemmenden Zusatz eine organische Chlor- oder Bromverbindung alleine oder in Kombination mit Antimontrioxid enthält.

7. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als flammhemmenden Zusatz eine Kombination von Antimontrioxid mit bromiertem Polystyrol oder mit N,N'-Ethylen-bis-tetrabromphthalimid, und vorzugsweise mit Decabromdiphenylether enthält.
8. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Komponente d) ein Smektit, vorzugsweise ein Bentonit bzw. Montmorillonit enthält.
9. Formmasse gemäß Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass das Smektit organisch, vorzugsweise mit organischen Ammoniumsalzen, modifiziert ist.
10. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Komponente d) Dimethyl-Dioctadecyl-Ammonium-Bentonit bzw. -Montmorillonit enthält.
11. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Komponente d) ein Claytone<sup>®</sup> oder Bentone<sup>®</sup> enthält.
12. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Komponente d) Bentone<sup>®</sup> 27 oder 38, vorzugsweise Bentone<sup>®</sup> 500 oder Bentone<sup>®</sup> SD-1 enthält.
13. Formmasse gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Komponente e) Kalium- und/oder Natriumstearat, Kalium- und/oder Natriumoleat, vorzugsweise Kaliumoleat enthält.
14. Formmasse gemäß Anspruch 1, worin die Anteile an Komponenten b) bis e) unabhängig voneinander betragen: Verstärkerfüllstoff b) 10 bis 50 Gew.-%, besonders 10 bis 40 Gew.-%, flammhemmender Zusatz c) 10 bis 20 Gew.-%; Schichtsilikat d) 0,75 bis 2,0 Gew.-% und Komponente e) 0,05 bis 1,0 Gew.-%, besonders 0,1 bis 0,6 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der Formmassen.

15. Verfahren zur Herstellung von geformten Gegenständen, dadurch gekennzeichnet, dass man eine Formmasse gemäss Anspruch 1 verformt.

16. Formkörper hergestellt aus der Formmasse gemäss Anspruch 1.

FO 7.3 SZ/rs\*

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**